

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-72521

(43) 公開日 平成7年(1995)3月17日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

G 0 2 F 1/37

9316-2K

1/35

9316-2K

H 0 1 S 3/109

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号

特願平5-218559

(22) 出願日

平成5年(1993)9月2日

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 原田 明憲

神奈川県足柄上郡開成町宮台798番地 富

士写真フイルム株式会社内

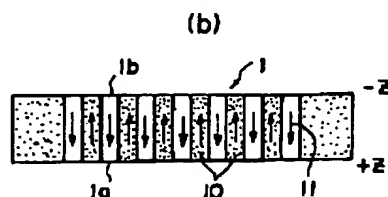
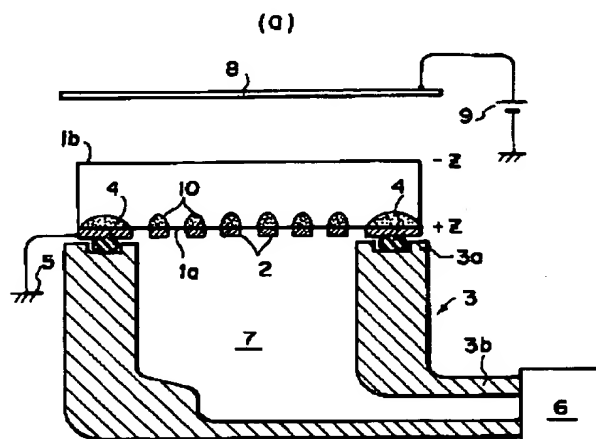
(74) 代理人 弁理士 柳田 征史 (外1名)

(54) 【発明の名称】 強誘電体のドメイン反転構造形成方法および装置

(57) 【要約】

【目的】 非線形光学効果を有する強誘電体に、所定周期のドメイン反転構造を深さ方向に均一に、かつ再現性良く形成する。

【構成】 単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体である  $MgO-LiNbO_3$  基板1の一表面1aに所定パターンの電極2を形成し、これらの電極2と、上記一表面1aと反対の表面1b側に配したコロナワイヤー8とにより基板1をコロナ帯電させてそこに電場を印加し、該基板1の電極2に対向する部分を局所的なドメイン反転部10とする際に、電極2が形成された基板1の一表面1a側に容器3をあてがい、それにより画成された閉空間7内を真空ポンプ6によって真空状態に保つ一方、この一表面1aと反対の表面1b側は真空状態としないで上記電場を印加する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に所定パターンの電極を形成した後、これらの電極と、前記一表面と反対の表面側に配したコロナワイヤーとにより前記強誘電体をコロナ帯電させてそこに電場を印加し、該強誘電体の前記電極に対向する部分を局所的なドメイン反転部とする強誘電体のドメイン反転構造形成方法において、前記電極が形成された強誘電体の一表面側を真空状態に保つ一方、この一表面と反対の表面側は真空状態としない前記電場を印加することを特徴とする強誘電体のドメイン反転構造形成方法。

【請求項2】 単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に所定パターンの電極を形成した後、これらの電極と、前記一表面と反対の表面側に配したコロナワイヤーとにより前記強誘電体をコロナ帯電させてそこに電場を印加し、該強誘電体の前記電極に対向する部分を局所的なドメイン反転部とする強誘電体のドメイン反転構造形成方法において、前記電極が形成された強誘電体の一表面側を絶縁性流体に接する状態に保つ一方、この一表面と反対の表面側は絶縁性流体に接する状態としない前記電場を印加することを特徴とする強誘電体のドメイン反転構造形成方法。

【請求項3】 単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に形成された所定パターンの電極と、前記一表面と反対の表面側に配されたコロナワイヤーと、これらの電極とコロナワイヤーとを介して前記強誘電体に電圧を印加し、該強誘電体をコロナ帯電させる電源と、

前記電極が形成された強誘電体の一表面の周囲に気密に\*

$$\Delta c = 2\pi / \{ \beta(2\omega) - 2\beta(\omega) \} \quad \dots\dots(1)$$

ただし $\beta(2\omega)$ は第2高調波の伝搬定数

$2\beta(\omega)$ は基本波の伝搬定数

で与えられるコヒーレント長 $\Delta c$ の整数倍になるように設定することで、基本波と第2高調波との位相整合を取ることができる。非線形光学材料のバルク結晶を用いて波長変換する場合は、位相整合する波長が結晶固有の特定波長に限られるが、上記の方法によれば、任意の波長に対して(1)を満足する周期 $\Lambda$ を選択することにより、効率良く位相整合を取ることが可能となる。

【0003】 上述のような周期ドメイン反転構造を形成する方法の1つとして、本出願人による特願平5-21152号明細書に示されるように、単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に所定パターンの電極を形成した後、これらの電極と、上記一表面と反対の表面側に配したコロナワイヤーとにより強誘電体をコロナ帯電させてそこに電場を印加し、該強誘電体の上記電極に対向する部分を局所的なドメイン反転部とする方法が知※50

\* 接し、この表面を1つの周壁とする閉空間を画成する手段と、この閉空間内を真空状態に保つ空気吸引手段とからなる強誘電体のドメイン反転構造形成装置。

【請求項4】 単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に形成された所定パターンの電極と、前記一表面と反対の表面側に配されたコロナワイヤーと、これらの電極とコロナワイヤーとを介して前記強誘電体に電圧を印加し、該強誘電体をコロナ帯電させる電源と、

前記電極が形成された強誘電体の一表面の周囲に気密に接し、この表面を1つの周壁とする閉空間を画成する手段と、この閉空間内に充填された絶縁性流体とからなる強誘電体のドメイン反転構造形成装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、基本波を第2高調波に変換する光波長変換素子、特に詳細には周期ドメイン反転構造を有する光波長変換素子を作成するために、非線形光学効果を有する強誘電体に所定パターンのドメイン反転構造を形成する方法、およびその方法を実施する装置に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 非線形光学効果を有する強誘電体の自発分極(ドメイン)を周期的に反転させた領域を設けた光波長変換素子を用いて、基本波を第2高調波に波長変換する方法が既にBleombergenらによって提案されている(Phys. Rev., vol. 127, No. 6, 1918 (1962) 参照)。この方法においては、ドメイン反転部の周期 $\Lambda$ を、

※られている。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】 このコロナ帯電を利用する強誘電体のドメイン反転構造形成方法は、強誘電体に電子線ビームを所定パターンに照射する方法等に比べれば生産性に優れているが、その半面、ドメイン反転部の深さ方向の均一性、再現性が得難いという問題が認められている。

【0005】 ドメイン反転部の深さ方向の均一性、再現性を改善するために、例えば前記特願平5-21152号明細書にも示されているように、強誘電体を真空下に置いて電場印加することが既に提案されている。しかし、従来この方法は、強誘電体の相対向する2表面に形成した電極を介して直接電場印加する場合に適用されるのみで、コロナ帯電を利用して電場印加する場合には適用されていなかった。つまり、真空状態でコロナ帯電させることは不可能であるので、真空下での電場印加をコロナ帯

電によるドメイン反転構造形成方法に適用することは原理的に不可能であると考えられてきた。

【0006】本発明は上記の事情に鑑みてなされたものであり、所定周期のドメイン反転構造を、深さ方向に均一に、また再現性良く形成することができる強誘電体のドメイン反転構造形成方法を提供することを目的とするものである。

【0007】また本発明は、上記の方法を実施する装置を提供することを目的とするものである。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明による第1の強誘電体のドメイン反転構造形成方法は、先に述べたように、単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に所定パターンの電極を形成した後、これらの電極と、上記一表面と反対の表面側に配したコロナワイヤーとにより強誘電体をコロナ帯電させてそこに電場を印加し、該強誘電体の上記電極に対向する部分を局所的なドメイン反転部とする強誘電体のドメイン反転構造形成方法において、上記電極が形成された強誘電体の一表面側を真空状態に保つ一方、この一表面と反対の表面側は真空状態としないで電場を印加することを特徴とするものである。

【0009】また本発明による第2の強誘電体のドメイン反転構造形成方法は、上記第1の方法と同様に、単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に所定パターンの電極を形成した後、これらの電極と、上記一表面と反対の表面側に配したコロナワイヤーとにより強誘電体をコロナ帯電させてそこに電場を印加し、該強誘電体の上記電極に対向する部分を局所的なドメイン反転部とする強誘電体のドメイン反転構造形成方法において、上記電極が形成された強誘電体の一表面側を絶縁性流体に接する状態に保つ一方、この一表面と反対の表面側は絶縁性流体に接する状態としないで電場を印加することを特徴とするものである。

【0010】一方、上記第1の方法を実施する本発明による第1の強誘電体のドメイン反転構造形成装置は、単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に形成された所定パターンの電極と、上記一表面と反対の表面側に配されたコロナワイヤーと、これらの電極とコロナワイヤーとを介して強誘電体に電圧を印加し、該強誘電体をコロナ帯電させる電源と、上記電極が形成された強誘電体の一表面の周囲に気密に接し、この表面を1つの周壁とする閉空間を画成する手段と、この閉空間内を真空状態に保つ空気吸引手段とを備えたことを特徴とするものである。

【0011】また、上記第2の方法を実施する本発明による第2の強誘電体のドメイン反転構造形成装置は、単分極化された非線形光学効果を有する強誘電体の一表面に形成された所定パターンの電極と、上記一表面と反対の表面側に配されたコロナワイヤーと、これらの電極と

コロナワイヤーとを介して強誘電体に電圧を印加し、該強誘電体をコロナ帯電させる電源と、上記電極が形成された強誘電体の一表面の周囲に気密に接し、この表面を1つの周壁とする閉空間を画成する手段と、この閉空間内に充填された絶縁性流体とを備えたことを特徴とするものである。

【0012】

【作用および発明の効果】本発明者等の研究によると、ドメイン反転部の深さ方向の均一性、再現性が悪くなる原因の一つは、電場を印加する際に強誘電体の表面抵抗が、大気雰囲気中の湿度等の影響で低下しかつ不均一になってしまうことにある。

【0013】そこで本発明の第1の方法のように、電場印加の際にドメイン反転部が伸び始める、電極が形成された方の強誘電体表面側を真空状態に保つておくと、強誘電体の表面抵抗が雰囲気中の湿度等のために低下し、あるいは不均一になって、電極間の絶縁性が悪化することが防止され、深さが均一で、また面内形状も均一な所定周期のドメイン反転構造を再現性良く形成できるようになる。

【0014】また本発明の第2の方法は、上記電極が形成された方の強誘電体表面側を真空状態に保つ代わりに、この電極が形成された方の強誘電体表面側を絶縁性流体に接する状態に保つものであるから、この場合も強誘電体の表面抵抗および電極間の絶縁性については第1の方法におけるのと同様のことが言え、深さが均一で、また面内形状も均一な所定周期のドメイン反転構造を再現性良く形成できるようになる。

【0015】本発明の方法においては、上記の通り、電極が形成された方の強誘電体表面側が真空状態、あるいは絶縁性流体に接する状態に保たれるが、この表面と反対の表面側、つまりコロナワイヤーが配置される方の表面側は真空状態、あるいは絶縁性流体に接する状態とされないで、このコロナワイヤーを利用して、通常通り強誘電体をコロナ帯電させることが可能である。

【0016】そして、前述の通りの閉空間を画成する手段と、この閉空間内を真空状態に保つ空気吸引手段とを備えた本発明の第1のドメイン反転構造形成装置によれば、電極が形成された方の強誘電体表面側のみを真空状態に保つことも容易であり、よって上記第1の方法を簡便に実施可能となる。

【0017】また、上記の閉空間を画成する手段と、この閉空間内に充填された絶縁性流体とを備えた本発明の第2のドメイン反転構造形成装置によれば、電極が形成された方の強誘電体表面側のみを絶縁性流体に接触させることも容易であり、よって上記第2の方法を簡便に実施可能となる。

【0018】

【実施例】以下、図面に示す実施例に基づいて本発明を詳細に説明する。図1は、本発明の第1実施例により強

10

20

30

40

50

誘電体にドメイン反転構造を形成する様子を示している。この図1中、1は非線形光学効果を有する強誘電体である $\text{MgO-LiNbO}_3$ の基板である。この基板1は単分極化処理がなされて厚さ0.5 mmに形成され、最も大きい非線形光学定数 $d_{33}$ が有効に利用できるようにz面で光学研磨されている。この基板1の+z面1a上に金属Taをスパッタして厚さ50 nmのTa薄膜を形成した後、フォトリソグラフィとドライエッチングにより、同図(a)に示されるようなTaマスクからなる周期電極パターン2を形成する。

【0019】次に、この基板1の+z面1aの周囲部分に(直接的にはその部分にある電極パターン2に)、図中上端が例えば四角形に開口した容器3の周壁3aを密接させる。このとき、+z面1aの周囲部分と容器周壁3aとの間にはリング4を介装し、両者の間を気密に保つ。またこの+z面1aは、アース5に落としておく。上記容器3は、真空ポンプ6に接続される細いエア抜き管3bを有しており、基板1の+z面1aにこの容器3があてがわれることにより、該+z面1aを1つの周壁とする閉空間7が画成される。その後真空ポンプ6が駆動され、この閉空間7は真空状態に保たれる。なお、このときの真空度は例えば $1 \times 10^{-5}$  Torr 以下とされる。

【0020】この状態で、基板1の-z面1bの上方に配したコロナワイヤー8およびそれに接続された高圧電源9を用いて、基板1にコロナ帯電により電場を印加した。この際、基板1の温度は室温から300 °Cの間の範囲に設定し、コロナワイヤー8と基板1との距離は10 mmに設定し、高圧電源9からこのコロナワイヤー8を介して例えば5 kVの電圧を30秒間印加する。

【0021】次いで基板1のy面を切断、研磨した後、HF(フッ酸)と $\text{HNO}_3$ (硝酸)とが混合されてなるエッチング液を用いて選択エッチングを行なった。そしてこの基板1の断面(y面)を観察したところ、図1の(b)に示すように、周期電極パターン2が形成されていた箇所において、この電極パターン2に対応した所定周期ですべて-z面から+z面まで均一に貫通し、そしてy面内形状も均一な周期ドメイン反転部10が再現性良く形成されているのが確認された。なおこの図1(b)の矢印11は、分極の方向を示している。

【0022】次に、本発明方法によりドメイン反転構造が形成された光波長変換素子について説明する。上記実施例のようにして基板1のx軸方向に並ぶ周期ドメイン反転部10を形成し、x面および-x面を研磨し、また無反射コートを施してそれぞれ光通過面20a、20bとすることにより、図2に示すようなバルク結晶型の光波長変換素子20が得られる。この周期ドメイン反転構造を有するバルク結晶型光波長変換素子20を、同図に示すレーザダイオード励起YAGレーザの共振器内に配置した。この場合946 nmに位相整合を取るため、 $\text{MgO-LiN}$

$\text{bO}_3$ の屈折率の波長分散を考慮して、電極パターン2の周期 $\Lambda$ は基板1のx方向に4.7  $\mu\text{m}$ の1次周期とし、結晶長は1 mmとした。

【0023】このレーザダイオード励起YAGレーザは、波長809 nmのポンピング光としてのレーザビーム13を発するレーザダイオード14と、発散光状態のレーザビーム13を収束させる集光レンズ15と、Nd(ネオジウム)がドーピングされたレーザ媒質であって上記レーザビーム13の収束位置に配されたYAG結晶16と、このYAG結晶16の前方側(図中右方)に配された共振器ミラー17とからなる。光波長変換素子20は、この共振器ミラー17とYAG結晶16との間に配置されている。

【0024】YAG結晶16は波長809 nmのレーザビーム13により励起されて、波長946 nmのレーザビーム18を発する。この固体レーザビーム18は、所定のコートが施されたYAG結晶端面16aと共振器ミラー17のミラー面17aとの間で共振し、光波長変換素子20に入射して波長が $1/2$ すなわち473 nmの第2高調波19に変換される。基本波としての固体レーザビーム18と第2高調波19は、周期ドメイン反転領域において位相整合(いわゆる疑似位相整合)し、ほぼこの第2高調波19のみが共振器ミラー17から出射する。

【0025】本例においては、レーザダイオード14の出力が200 mWのとき、10 mWの出力の第2高調波19が得られた。そして、周期ドメイン反転部10は面内、深さ方向とも均一形状であるため、光波長変換素子20の光通過部分をどこに設定しても上記の高出力が得られるものとなった。それに対して、基板1の+z面1aを真空状態下に置かないで、それ以外は上記実施例と同様にしてドメイン反転構造を形成したバルク結晶型光波長変換素子を用いた場合は、そのドメイン反転部の形状が不均一であるため光波長変換素子の光通過部分をどこに設定するかで光波長変換効率が大きく変化する上、レーザダイオード14の出力を上記と同じとしたときの第2高調波出力は最大でも3 mWと低かった。

【0026】以上のように高い波長変換効率が得られたことから、本発明によれば、ドメイン反転部を深さ方向および面内で均一に形成可能であることが裏付けられている。

【0027】次に図3を参照して、本発明の第2実施例について説明する。なおこの図3において、図1中の要素と同等の要素には同番号を付し、それらについての重複した説明は省略する。

【0028】この第2実施例においては、第1実施例で用いられた容器3の周壁3aと同様の周壁30aを有する容器30が、基板1の+z面1a側に取り付けられる。この容器30は、図示しない保持具により基板1と一体化される。そして容器30の中には、絶縁オイル31が充填される。なおこの絶縁オイル31としては、公知のアルキルベンゼン、ポリブデン、塩素化合成オイル、シリコンオ

イル、フッ素オイル等の合成絶縁オイルや、あるいは鉱油系絶縁オイルを適宜用いることができる。容器30と基板1とを一体化する作業は、上記絶縁オイル31を貯えた槽内にこれら両者を浸漬した状態で行なわれる。それにより、容器30内には気泡が残ることなく絶縁オイル31が完全に充填され、基板1の電極パターン2が形成された+z面1aは全面的にこの絶縁オイル31で覆われるようになる。

【0029】この状態で、第1実施例と同様にして、基板1にコロナ帯電による電場印加がなされる。この際、電極パターン2が形成された基板1の+z面1aが絶縁オイル31で覆われているため、この+z面1aの表面抵抗が雰囲気中の湿度等のために低下し、あるいは不均一になって、電極間の絶縁性が悪化することが防止される。そこでこの実施例においても、深さが均一で、また面内形状も均一な所定周期のドメイン反転構造を再現性良く形成できるようになる。

【0030】なお上述した絶縁オイル31に代えて、その他の絶縁性液体、さらには絶縁性ガスを用いても、同様の作用効果を得ることができる。この絶縁性ガスとしては、電子を付着して負イオンになりやすいいわゆる負性気体、より詳しくは、分子中にハロゲン元素を含む吸着しやすい気体が好適に利用可能であり、具体的にはフッ化炭素系ガス( $\text{CCl}_2\text{F}_2$ 等のフロン類)、 $\text{SF}_6$ 等が挙げられる。

【0031】また、本発明によりドメイン反転構造が形成された強誘電体は、適当な研磨、コートを施してリング共振器の要素とすることにより、外部共振器型レーザーの光波長変換素子として適用することもできる。そのようにする場合も、レーザーダイオード励起固体レーザーに適用する場合と同様の作用、効果を得ることができる。また、本発明によりドメイン反転構造が形成された強誘電

体から、導波路型の光波長変換素子を形成することも勿論可能である。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1実施例の方法により周期ドメイン反転構造を形成する様子を示す概略図

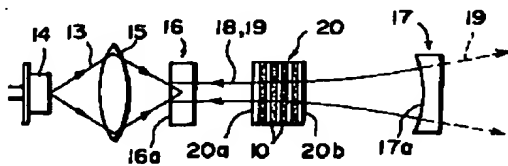
【図2】本発明の方法により作成された周期ドメイン反転構造を有するバルク結晶型光波長変換素子の使用状態を示す概略側面図

【図3】本発明の第2実施例の方法により周期ドメイン反転構造を形成する様子を示す概略図

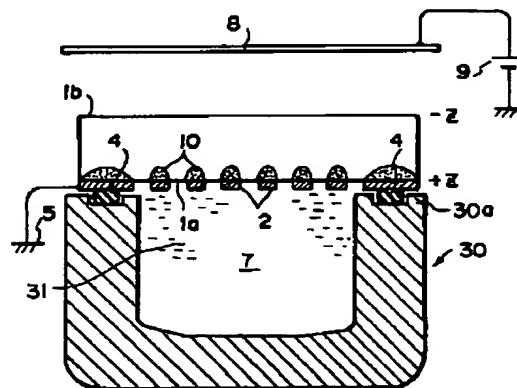
【符号の説明】

- 1  $\text{MgO-LiNbO}_3$  単分極化基板(z板)
- 1a  $\text{MgO-LiNbO}_3$  単分極化基板の+z面
- 1b  $\text{MgO-LiNbO}_3$  単分極化基板の-z面
- 2 電極パターン
- 3、30 閉空間画成用容器
- 4 オリング
- 5 アース
- 6 真空ポンプ
- 7 閉空間
- 8 コロナワイヤー
- 9 高圧電源
- 10 ドメイン反転部
- 13 レーザビーム(ポンピング光)
- 14 レーザダイオード
- 15 集光レンズ
- 16 YAG結晶
- 17 共振器ミラー
- 18 固体レーザービーム(基本波)
- 19 第2高調波
- 20 バルク結晶型光波長変換素子
- 31 絶縁オイル

【図2】



【図3】



【図1】

